

*Cited Ref. 2  
(Abstract)*

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 09-063622  
(43)Date of publication of application : 07.03.1997

(51)Int.Cl. H01M 8/10  
H01M 4/86  
H01M 4/88  
H01M 8/02

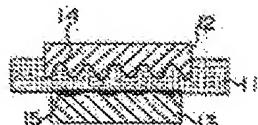
(21)Application number : 07-220778 (71)Applicant : MITSUBISHI ELECTRIC CORP  
(22)Date of filing : 29.08.1995 (72)Inventor : MAEDA HIDEO  
MITSUTA KENRO  
URUSHIBATA HIROAKI

### (54) MANUFACTURE OF SOLID POLYMER FUEL CELL AND SOLID POLYMER FUEL CELL

#### (57)Abstract

PROBLEM TO BE SOLVED: To avoid loss due to short-circuiting while keeping a function of a fuel cell.

SOLUTION: A first catalytic layer 14 is formed on one side of a solid polymer electrolytic membrane 11 and at the same time a second catalytic layer 15 is formed on the surface of an electrode substrate of a cathode 13 and then an anode 12 is layered on the first catalytic layer 14. Next, a second catalytic layer 15 of the cathode 13 is formed on the other side of the solid polymer electrolytic membrane 11 and respective electrodes 12, 13 are united with the solid polymer electrolytic membrane 11 by press-bonding.



(10) 日本国特許庁 (JP)

## (12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平9-63622

(43) 公開日 平成9年(1997)3月7日

(61) Int.Cl.  
H01M 8/10  
4/88  
4/88  
8/02

識別記号 序内整理番号

F I  
H01M 8/10  
4/88  
4/88  
8/02

技術表示箇所  
M  
X  
B

審査請求 未請求 請求項の数8 O.L. (金7頁)

(21) 出願番号 特願平7-220778

(22) 出願日 平成7年(1995)8月22日

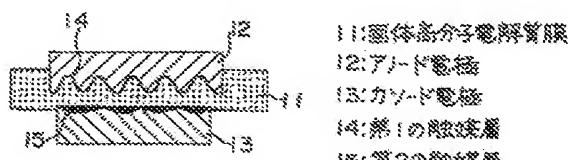
(71) 出願人 009366013  
三菱電機株式会社  
東京都千代田区丸の内二丁目2番3号  
(72) 発明者 前田 秀雄  
東京都千代田区丸の内二丁目2番3号 三菱電機株式会社内  
(72) 発明者 光田 敏朗  
東京都千代田区丸の内二丁目2番3号 三菱電機株式会社内  
(72) 発明者 塚越 広明  
東京都千代田区丸の内二丁目2番3号 三菱電機株式会社内  
(74) 代理人 弁理士 會員 道場 (外6名)

(54) 【発明の名称】 固体高分子形燃料電池の製造方法及び固体高分子形燃料電池

## (57) 【要約】

【課題】 本発明は、電池性能を保ったまま、短絡による損失を回避することを目的とするものである。

【解決手段】 固体高分子電解質膜11の一方の面上に第1の触媒層14を設けるとともに、カソード電極13の電極基材の表面に第2の触媒層15を設けた後、第1の触媒層14上にアノード電極12を重ねるとともに、固体高分子電解質膜11の他方の面上にカソード電極13の第2の触媒層15を重ねて、各電極12、13を固体高分子電解質膜11に圧着し一体化するようにした。



11: 固体高分子電解質膜  
12: アノード電極  
13: カソード電極  
14: 第1の触媒層  
15: 第2の触媒層

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 固体高分子電解質膜の一方の面上に第1の触媒層を設けるとともに、アノード電極及びカソード電極のいずれか一方の電極の電極基材の表面に第2の触媒層を設ける工程、及び上記第1の触媒層上に上記アノード電極及び上記カソード電極のいずれか他方を重ねるとともに、上記固体高分子電解質膜の他方の面上に上記一方の電極の第2の触媒層を重ねて、上記各電極を上記固体高分子電解質膜に圧着し一体化する工程を含むことを特徴とする固体高分子形燃料電池の製造方法。

【請求項2】 第2の触媒層が設けられる一方の電極がカソード電極であることを特徴とする請求項1記載の固体高分子形燃料電池の製造方法。

【請求項3】 フッ素系ポリマー及びその懸濁液のいずれか一方と触媒粒子とを混練したものを電極基材の表面に塗布し、上記フッ素系ポリマーの融点以上の温度で熱処理を行い、さらに上記電極基材の表面に固体高分子電解質膜の分散液を塗布することにより、上記第2の触媒層を設けることを特徴とする請求項1又は請求項2記載の固体高分子形燃料電池の製造方法。

【請求項4】 固体高分子電解質膜の両側に該固体高分子電解質膜よりも面積の小さいアノード電極及びカソード電極を記するとともに、上記各電極が設けられた部分を除く上記固体高分子電解質膜の表面に上記各電極よりも薄い非圧縮性のフィルムを配する工程、及び上記各電極及び上記フィルムを上記固体高分子電解質膜に圧着し一体化する工程を含むことを特徴とする固体高分子形燃料電池の製造方法。

【請求項5】 固体高分子電解質膜と、この固体高分子電解質膜の一方の面上に圧着されているアノード電極と、上記固体高分子電解質膜の他方の面上に圧着されているカソード電極と、上記固体高分子電解質膜と上記各電極との間の界面にそれぞれ設けられている第1及び第2の触媒層とを備え、上記第1及び第2の触媒層のいずれか一方の触媒層が凹凸を有して上記固体高分子電解質膜に食い込んでいるとともに、他方の触媒層は、上記固体高分子電解質膜側が平滑で電極側に凹凸のある形状となっていることを特徴とする固体高分子形燃料電池。

【請求項6】 複数の孔が周辺部に設けられている固体高分子電解質膜と、この固体高分子電解質膜の一方の面上に圧着されている上記固体高分子電解質膜よりも面積の小さいアノード電極と、

上記固体高分子電解質膜の他方の面上に圧着されている上記固体高分子電解質膜よりも面積の小さいカソード電極と、

上記固体高分子電解質膜の両面の周辺部にそれぞれ圧着されており、かつ上記固体高分子電解質膜の孔に通過し

て燃料ガス及び酸化剤ガスの供給口及び排出口を形成する複数の孔が設けられている棒状のフィルムと。

上記アノード電極側では、上記燃料ガスの供給口、排出口及び上記アノード電極を分断せずに留むように、かつ上記酸化剤ガスの供給口及び排出口をそれぞれ独立して留むように設けられ、上記カソード電極では、上記酸化剤ガスの供給口、排出口及び上記カソード電極を分断せずに留むように、かつ上記燃料ガスの供給口及び排出口をそれぞれ独立して留むように設けられ、それぞれ上記燃料ガス及び上記酸化剤ガスをシールする複数のシール材と、

上記固体高分子電解質膜、上記各電極及び上記フィルムの一休化物の両面に上記シール材を介して巻き戻されるセパレータとを備えていることを特徴とする固体高分子形燃料電池。

【請求項7】 セパレータの各電極に接合される側の面には、フィルムに対向する周辺部よりも上記各電極に接合される中央部の方が厚くなるように段差が設けられていることを特徴とする請求項6記載の固体高分子形燃料電池。

【請求項8】 セパレータの段差は40～150μmであり、シール材の厚みが上記段差よりも30～100μm厚くなっていることを特徴とする請求項7記載の固体高分子形燃料電池。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】この発明は、電気化学的な反応を利用して発電を行う固体高分子形燃料電池の製造方法及び固体高分子形燃料電池に関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】従来、プロトン交換膜の両側に配した電極の一方に燃料を、他方には酸化剤を供給し、燃料の酸化を電池内で電気化学的に反応させることにより化学エネルギーを電気エネルギーに直接変換する固体高分子形燃料電池が知られている。

【0003】図9は例えば第34回電池討論会講演要旨集1B06(1993年)に示された従来の固体高分子形燃料電池の概略の断面図である。図において、1は固体高分子電解質膜、2は固体高分子電解質膜1の一方の面上に設けられているアノード電極、3は固体高分子電解質膜1の他方の面上に設けられているカソード電極、4及び5は固体高分子電解質膜1と各電極2、3との間に介在している第1及び第2の触媒層である。

【0004】図10は図9の燃料電池の製造途中の状態を示す断面図である。上記の触媒層4、5は、固体高分子電解質膜1の両面に塗布されており、各電極2、3のホットプレスを行う際に、電極基材であるカーボンペーパーが固体高分子電解質膜1に食い込むことによって凹凸が発生する。また、電極基材が固体高分子電解質膜1に食い込むことにより、各電極2、3の電極基材間の距

離が近接する。

【0005】次に、発電の動作について説明する。アノード電極2に水素ガス、カソード電極3に酸素をそれぞれ供給し、外部回路を通して各電極2、3から電流を取り出すと、 $H_2 \rightarrow 2H^+ + 2e^-$  (アノード反応)、 $2H^+ + 2e^- + 1/2O_2 \rightarrow H_2O$  (カソード反応) という反応が生じる。

【0006】このとき、アノード電極2上で水素がプロトンとなり、水を伴って固体高分子形電解質膜1中をカソード電極3まで移動し、カソード電極3上で酸素と反応して水を生じる。このときに流れの電流は、時には  $1A/cm^2$  を超える大きなものとなり。触媒層4、5が凹凸を持ち、実際に反応が行われる固体高分子電解質膜1と各電極2、3との界面の面積が大きくなったり、及び電極2、3間の距離が短くなり抵抗が減少したことによる特性の向上の効果が現れている。

【0007】また、燃料電池の1セル当たりの発生電圧は1V以下であり、発電した電力で効率良く機器を動作させるためには、多數のセル(単電池)を積層する必要があり、ガスを流すセパレータ板や固体高分子電解質膜1及び電極2、3の一体化物の厚さをできるだけ薄くする必要がある。

【0008】図8は特開平6-215781号公報に示された固体高分子形燃料電池の一部を示す断面図である。この例では、電池反応に寄与しない周辺部のカーボンペーパーの基材内にシール剤6を注入することで、厚みを増すことなく、ガスや水の漏洩が防止され、かつガスや水の供給及び排出が効率良く行われる。

【0009】

【発明が解決しようとする課題】上記のように構成された従来の固体高分子形燃料電池においては、電極基材であるカーボンペーパーの基材内にシール剤6を注入することで、厚みを増すことなく、ガスや水の漏洩が防止され、かつガスや水の供給及び排出が効率良く行われる。

【0010】この発明は、上記のような問題点を解決することを課題としてなされたものであり、電池性能を保

ったまま、短絡による損失を回避し、かつ固体高分子電解質膜と電極との一体化物をコンパクトに維持しつつ、ガスシール性能の優れた固体高分子形燃料電池の製造方法及び固体高分子形燃料電池を得ることを目的とする。

【0011】

【課題を解決するための手段】請求項1の発明に係る固体高分子形燃料電池の製造方法は、固体高分子電解質膜の一方の面上に第1の触媒層を設けるとともに、アノード電極及びカソード電極のいずれか一方の電極の電極基材の表面に第2の触媒層を設ける工程、及び第1の触媒層上にアノード電極及びカソード電極のいずれか他方を重ねるとともに、固体高分子電解質膜の他方の面上に一方の電極の第2の触媒層を重ねて、各電極を固体高分子電解質膜に圧着し一体化する工程を含むものである。

【0012】請求項2の発明に係る固体高分子形燃料電池の製造方法は、第2の触媒層が設けられる一方の電極をカソード電極としたものである。

【0013】請求項3の発明に係る固体高分子形燃料電池の製造方法は、フッ素系ポリマー及びその懸濁液のいずれか一方と触媒粒子とを混練したものを電極基材の表面に塗布し、フッ素系ポリマーの融点以上の温度で熱処理を行い、さらに電極基材の表面に固体高分子電解質膜の分散液を塗布することにより、第2の触媒層を設けるものである。

【0014】請求項4の発明に係る固体高分子形燃料電池の製造方法は、固体高分子電解質膜の両側に該固体高分子電解質膜よりも面積の小さいアノード電極及びカソード電極を配するとともに、各電極が設けられた部分を除く固体高分子電解質膜の表面に各電極よりも薄い非圧縮性のフィルムを配する工程、及び各電極及びフィルムを固体高分子電解質膜に圧着し一体化する工程を含むものである。

【0015】請求項5の発明に係る固体高分子形燃料電池は、固体高分子電解質膜と、この固体高分子電解質膜の一方の面上に圧着されているアノード電極と、固体高分子電解質膜の他方の面上に圧着されているカソード電極と、固体高分子電解質膜と各電極との間の界面にそれぞれ設けられている第1及び第2の触媒層とを備え、第1及び第2の触媒層のいずれか一方の触媒層が凹凸を有して固体高分子電解質膜に食い込んでいるとともに、他方の触媒層は、固体高分子電解質膜側が平滑で電極側に凹凸のある形状となっているものである。

【0016】請求項6の発明に係る固体高分子形燃料電池は、複数の孔が周辺部に設けられている固体高分子電解質膜と、この固体高分子電解質膜の一方の面上に圧着されている固体高分子電解質膜よりも面積の小さいアノード電極と、固体高分子電解質膜の他方の面上に圧着されている固体高分子電解質膜よりも面積の小さいカソード電極と、固体高分子電解質膜の両面の周辺部にそれぞれ圧着されており、かつ固体高分子電解質膜の孔に連通

して燃料ガス及び酸化剤ガスの供給口及び排出口を形成する複数の孔が設けられている脊状のフィルムと、アノード電極側では、燃料ガスの供給口、排出口及びアノード電極を分断せずに囲むように、かつ酸化剤ガスの供給口及び排出口をそれぞれ独立して囲むように設けられ、カソード電極側では、酸化剤ガスの供給口、排出口及びカソード電極を分断せずに囲むように、かつ燃料ガスの供給口及び排出口をそれぞれ独立して囲むように設けられ、それぞれ燃料ガス及び酸化剤ガスをシールする複数のシール材と、固体高分子電解質膜、各電極及びフィルムの一體化物の両面にシール材を介して積層されるセパレータとを備えたものである。

【0017】請求項7の発明に係る固体高分子形燃料電池は、セパレータの各電極に接合される側の面に、フィルムに向向する周辺部よりも各電極に接合される中央部の方が厚くなるように段差が設けられているものである。

【0018】請求項8の発明に係る固体高分子形燃料電池は、セパレータの段差が40～150μmであり、シール材の厚みが段差よりも30～100μm厚くなっているものである。

【0019】

【発明の実施の形態】以下、この発明の実施の形態を図について説明する。

実施の形態1、図1はこの発明の実施の形態1による固体高分子形燃料電池の概略の断面図、図2は図1の燃料電池の製造途中の状態を示す断面図である。

【0020】図において、11は固体高分子電解質膜であり、この例では、厚さ50μmのD u P o n t社製ナフィオン112膜を20cm角に切り出したものが使用されている。12は固体高分子電解質膜11の一方の面上に設けられているアノード電極、13は固体高分子電解質膜11の他方の面上に設けられているカソード電極であり、ここでは、各電極12、13の基材として厚さ270μmの東レ社製カーボンペーパーを、アノード電極12では15、4cm角に、カソード電極13では15cm角に切り出したものが使用されている。14及び15は固体高分子電解質膜11と各電極12、13との間の界面にそれぞれ設けられている第1及び第2の触媒層である。

【0021】次に、製造方法について説明する。酸化剤極側のカソード電極13には、白金触媒とテフロン（商標名）ディスペーションとを混練したものを塗布し、レベリングした後に350℃で焼成し、徐冷後、ナフィオン（商標名）液を塗布し乾燥させた。一方、燃料極側であるアノード側は、白金触媒とナフィオン液との懸濁液を固体高分子電解質膜11に直接塗り、真空乾燥を施した。これらを図2に示すように重ね、加熱圧着装置にセットし、接合温度170℃で面圧50kg/cm<sup>2</sup>を2分間保持し、徐冷後に圧力を保持すると、全体の厚みが

470μmになった。

【0022】このようにして製造されたセルでは、カソード電極13の表面に強固な第2の触媒層15が設けられているため、ホットプレスによるカソード電極13の固体高分子電解質膜11への食い込みが殆どない。このため、カソード側の第2の触媒層15は、固体高分子電解質膜11側が平滑で、カソード電極13側に凹凸を有する断面形状となっている。

【0023】一方、アノード側は、アノード電極12のカーボンペーパーがホットプレス時に固体高分子電解質膜11に食い込むため、カーボンペーパーの凹凸が反映された厚みが均一な第1の触媒層14が形成された。なお、カソード電極13は、固体高分子電解質膜11に殆ど食い込んでいないが、第2の触媒層15と固体高分子電解質膜11とが接着しているので、剥がれが生じることはない。また、アノード電極12は、カソード電極13が食い込まない分、電極間が接触するぎりぎりまで深く食い込ませることができるだけ、固体高分子電解質膜11との密着度が高く、剥がれにくくなっている。

【0024】次に、この実施の形態1の燃料電池の性能について説明する。図3は実施の形態1による燃料電池の性能を他の燃料電池と比較して示す電流と電圧の関係図である。図において、A：実施の形態1による燃料電池、B：固体高分子電解質膜の表面のみに触媒層を形成して圧着した従来例の燃料電池、C：両電極の電極基材表面に触媒層を形成して圧着した燃料電池の電流電圧曲線をそれぞれ示している。

【0025】まず、BとCとを比較すると、Bは電極基材の食い込みによって電極面積が増大した分、負荷をかけたときの特性が高い。しかし、負荷がかからない場合には、逆に電圧が低く、最終によりガスを燃耗に消費していることがわかる。一方、Aでは、開回路電圧はCと同様に高く、しかもアノード側の電極基材の十分な食い込みによって、電極面積の拡大効果も高く、また抵抗が低いため、負荷をかけたときの特性も優れている。負荷をかけたときのAとBとの差は、短絡電流によりBの電流効率が低下していることが原因である。

【0026】なお、図1の逆の構成、即ちアノード電極に触媒を直接塗り、カソード側は固体高分子電解質膜に触媒を直接塗った場合、カソード側の触媒層が大きく屈曲するが、反応により発生した水が酸素の流通を阻害するため、カソード側の触媒層の働きが悪く、上記実施の形態1程には高い特性を得ることはできなかった。

【0027】また、上記実施の形態1において燃料にCOを混入させた場合、アノード側の触媒層の面積の拡大により特性の低下が抑制できた。

【0028】実施の形態2、次に、図4はこの発明の実施の形態2による固体高分子形燃料電池の概略の断面図、図5は図4の平面図である。この例では、固体高分子電解質膜11及び各電極12、13の材料は、上記実

施の形態1と同様であるが、各電極12、13の大きさが固体高分子電解質膜11よりも小さくなっている。そして、固体高分子電解質膜11の両面の電極12、13により覆われていない部分には、各電極12、13よりも薄い非圧縮性の糸状のフィルム16、17が各電極12、13と重ならないように設けられている。

【0029】ここでは、アノード側のフィルム16として、厚さ1.75μmのポリフェニレンサルファイド(PFS)フィルムを21cm角に切り出し、中央に1.5、5cm角の穴を開けたものを使用した。カソード側のフィルム17としては、厚さ2.50μmのPFSフィルムを21cm角に切り出し、中央に1.5、1cm角の穴を開けたものを使用した。

【0030】上記のような積層体に対して190℃の温度、50kg/cm<sup>2</sup>の面圧でホットプレスを行った後、一体化物をプレス装置から取り出し、その厚みを測定した結果、4.75μmの一様な厚みを有していた。このように、上記実施の形態1における圧着条件よりも強い条件でありながら、僅かではあるが厚みが大きくなってしまい、最終厚みが非圧縮性のPFSフィルム16、17により規定されたことがわかる。

【0031】また、上記実施の形態1では厚み分布が20μm程度あったが、実施の形態2における厚み分布は10μm以内であり、より均一な接合を行うことができた。さらに、この実施の形態2の製造方法によれば、精度のそれほど高くないプレス装置であっても同様の結果が得られ、安価な装置での製造が可能である。

【0032】なお、上記実施の形態2では実施の形態1と同様の触媒層14、15を設けたが、従来例と同様に触媒層を設けても、また各電極12、13中に触媒を分散させるものについても、フィルム16、17による効果は得られる。

【0033】実施の形態3、次に、図6はこの発明の実施の形態3による固体高分子形燃料電池の固体高分子電解質膜及び電極の一体化物を示す平面図、図7は図6の一体化物の断面図、図8は図6及び図7のVIII-VIII線に沿う矢印断面図に相当する。

【0034】図において、18、19はフィルム16、17及び固体高分子電解質膜11を貫通している燃料供給口及び燃料排出口、20、21は同様にフィルム16、17及び固体高分子電解質膜11を貫通している空気供給口及び空気排出口、22、23は冷却水供給口及び冷却水排出口、24は燃料ガス、空気及び冷却水をシールするシール材である。また、図8の25、26は一体化物に接合されるセパレータであり、これらのセパレータ25、26は、フィルム16、17に対向する周辺部の厚さが電極12、13に接合される中央部の厚さよりも寸法Dだけ小さくなっている。さらに、セパレータ25、26には、燃料通路(図示せず)、空気通路25

a、26a及び冷却水通路(図示せず)が設けられている。

【0035】上記のシール材24は、フッ素ゴム系の旭硝子社製エイトシール(商標名)を注入機に入れて押し出すことにより、幅3mm、高さ(図8のS)100μmで図6及び図7のようなパターンを描いた。これを50mで2時間乾燥させた後、120℃で1時間硬化させた。また、セパレータ25、26の段差寸法Dは、50μmとした。

【0036】次に、動作について説明する。上下のセパレータ25、26を一体化物に押し付けると、シール材24が変形してセパレータ25、26と密着する。シール材24の幅は3mmであるが、実質的にセパレータ25、26と接触するのは2mm程度である。また、シール材24の長さは約8.0cmであり、面積はセパレータ面積(4.00cm<sup>2</sup>)の5%以下であるため、シール材24の厚みを100μmから寸法Dと同様の50μmに変形させるに要する力では、各電極12、13を押さえ付ける面圧を減少させることはなく、各電極12、13には一定の面圧をかけることができ、接触抵抗を最小限に抑えることができ、電圧降下が少なく、セル電圧が高くなる。

【0037】このとき、セパレータ25の空気通路25aから漏れてきた酸化剤ガスである空気は、シール材24により塞まれた空間を移動し、アノード電極12側や外部に漏れることなく、空気供給口20を経て、一側はカソード電極13を経て空気排出口21へと行き、残りはセパレータ26の空気通路26aへと流れ、無駄な漏洩はなくなった。また、燃料ガスについても、シール材24により塞まれた空間を移動して流れ、アノード電極12に供給される。

【0038】なお、上記実施の形態3では実施の形態1と同様の触媒層14、15を設けたが、従来例と同様に触媒層を設けても、また各電極12、13中に触媒を分散させるものについても、シール材24による効果は得られる。

【0039】また、段差を200μmよりも大きくすると、ガスの供給・排出口と電極とのガスの取り合いがスムーズでなくなり、逆に段差が小さいと電極に加える面圧が不十分となる。これらのことから、段差の範囲を40~150μmとし、シール材の厚みを段差の寸法よりも30μm以上100μm以下の範囲で厚くするのが好適である。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】この発明の実施の形態1による固体高分子形燃料電池の概略の断面図である。

【図2】図1の燃料電池の製造途中の状態を示す断面図である。

【図3】実施の形態1による燃料電池の性能を他の燃料電池と比較して示す電流と電圧の関係図である。

【図4】 この発明の実施の形態2による固体高分子形燃料電池の構造の断面図である。

【図5】 図4の平面図である。

【図6】 この発明の実施の形態3による固体高分子形燃料電池の固体高分子电解質膜及び電極の一体化物を示す平面図である。

【図7】 図6の一体化物の底面図である。

【図8】 図6及び図7の一体化物及びセパレータの要部断面図である。

【図9】 従来の固体高分子形燃料電池の一例を示す概略の断面図である。

\* 【図10】 図9の燃料電池の製造途中の状態を示す断面図である。

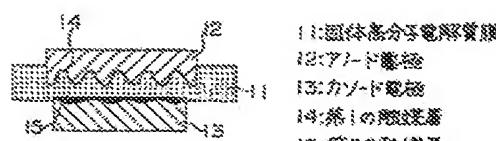
【図11】 従来の固体高分子形燃料電池の他の例を示す断面図である。

【符号の説明】

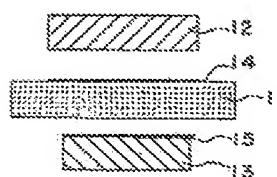
11 固体高分子电解質膜、12 アノード電極、13 カソード電極、14 第1の触媒層、15 第2の触媒層、16、17 フィルム、18 燃料供給口、19 燃料排出口、20 空気供給口、21 空気排出口、24 シール材、25、26 セパレータ。

\*

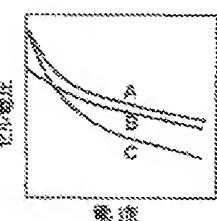
【図1】



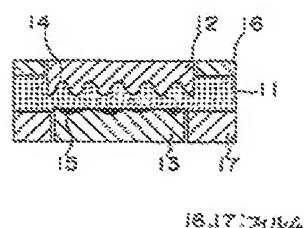
【図2】



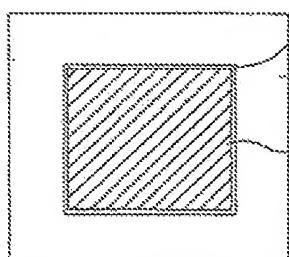
【図3】



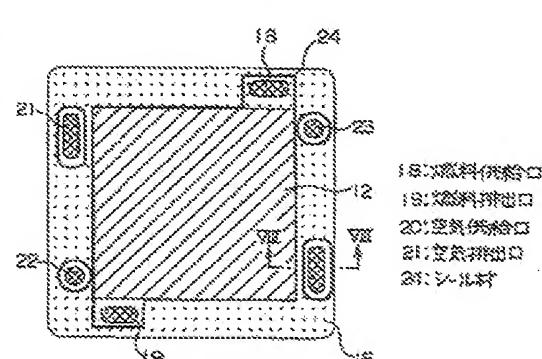
【図4】



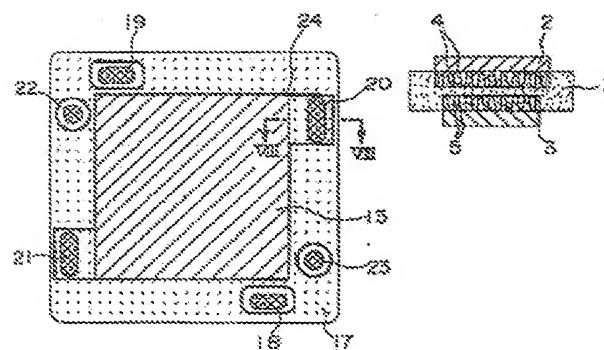
【図5】



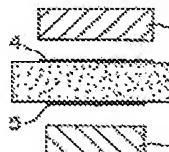
【図6】



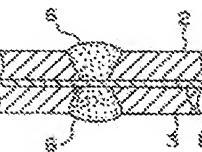
【図7】



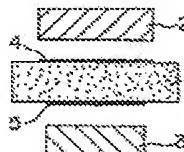
【図8】



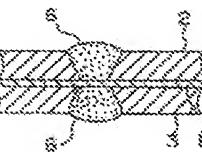
【図9】



【図10】



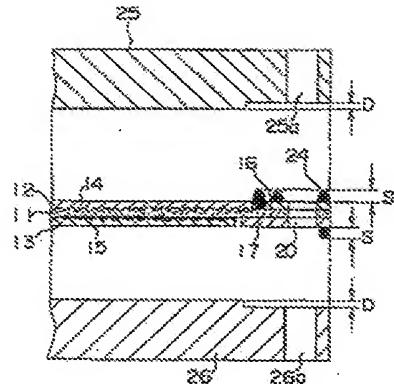
【図11】



(7)

特調平9-63622

100 100



25.25:1081-2